

(19)



(11)

EP 4 015 480 A2

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
22.06.2022 Patentblatt 2022/25

(51) Internationale Patentklassifikation (IPC):
C04B 12/00 (2006.01) C04B 28/00 (2006.01)

(21) Anmeldenummer: **21212465.5**

(52) Gemeinsame Patentklassifikation (CPC):
(C-Sets verfügbar)

(22) Anmeldetag: **06.12.2021**

C04B 12/005; C04B 28/006; C04B 2111/28;
C04B 2111/40; C04B 2201/32 (Forts.)

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB
GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO
PL PT RO RS SE SI SK SM TR
Benannte Erstreckungsstaaten:
BA ME
Benannte Validierungsstaaten:
KH MA MD TN

- **Fröhlich, Dr. Peter**
09599 Freiberg (DE)
- **Bertau, Prof. Dr. Martin**
09599 Freiberg (DE)
- **Dombrowski-Daube, Dr. Katja**
09599 Freiberg (DE)
- **Sachl, Jan**
09599 Freiberg (DE)
- **Huber, Ralf**
01683 Nossen (DE)
- **Lange, Dr. Heike**
09599 Freiberg (DE)

(30) Priorität: **18.12.2020 DE 102020134133**

(71) Anmelder: **Technische Universität Bergakademie**
Freiberg
09599 Freiberg (DE)

(74) Vertreter: **Kailuweit & Uhlemann Patentanwälte**
Partnerschaft mbB
Bamberger Straße 49
01187 Dresden (DE)

(72) Erfinder:
• **Kraft, Michael**
09599 Freiberg (DE)

(54) **RESTSTOFFBASIERTE ZUSAMMENSETZUNG ZUR HERSTELLUNG EINES**
GEOPOLYMER-LEICHTSTEINS; GEOPOLYMER-LEICHTSTEIN, SOWIE EIN VERFAHREN ZU
DESSEN HERSTELLUNG UND DEREN VERWENDUNG

(57) Die Erfindung betrifft eine reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen, enthaltend mindestens ein reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel, mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel, wobei das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten,

alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt. Weiterhin betrifft die Erfindung einen Geopolymer-Leichtstein, herstellbar aus einer reststoffbasierten Zusammensetzung und ein Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins.

EP 4 015 480 A2

(52) Gemeinsame Patentklassifikation (CPC): (Forts.)

C-Sets

**C04B 28/006, C04B 18/0409, C04B 18/06,
C04B 18/08, C04B 18/146, C04B 18/16,
C04B 22/0093, C04B 40/0263;
C04B 28/006, C04B 18/0409, C04B 18/06,
C04B 18/08, C04B 18/16, C04B 22/0093,
C04B 38/08, C04B 40/0263**

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins, einen Geopolymer-Leichtstein, sowie ein Verfahren zu dessen Herstellung und dessen Verwendung.

[0002] Die Verwertung von Reststoffen unterschiedlichster Industriezweige zur Herstellung von neuen Produkten spielt im Interesse einer nachhaltigen Nutzung von Ressourcen und Rohstoffen eine große Rolle. Im Bereich des Bauwesens stellen Geopolymere eine ressourcenschonende Alternative dar, z.B. als Zementersatz oder zur Herstellung von Ziegeln als Baumaterial. Geopolymere sind anorganische calciumfreie Polymere auf Basis von Silicium- und Aluminiumoxid. **Davidovits et al** beschreiben die Herstellung von Geopolymeren als chemische Reaktion, insbesondere Polykondensation, von Alumo-Silikat-Oxiden mit alkalischen Polysilikaten, welche in polymeren Si-O-Al Bindungen resultiert. Sie entstehen bei der Reaktion eines hochalkalischen Aktivators und einer reaktiven Komponente auf Basis von Silicium- und Aluminiumoxid. Ein Beispiel für eine reaktive Komponente auf Basis von Silicium- und Aluminiumoxid ist Metakaolin, welches aus natürlich vorkommenden, kaolinitischem Ton hergestellt wird. Die hochalkalischen Aktivatoren enthalten Alkalisilikate, wie bspw. Alkaliwassergläser und deren Lösungen.

[0003] Geopolymere sind schnell erhärtend, binden schrumpffrei ab und weisen hohe Druckfestigkeiten auf. Des Weiteren sind sie aufgrund ihrer Struktur und Zusammensetzung nicht brennbar, temperaturbeständig, formstabil und zeigen gegenüber allen anorganischen und organischen Säuren (außer Flusssäure) eine erhöhte Beständigkeit.

[0004] Geopolymere aus Reststoffen herzustellen ist bspw. aus **Zawrah et al** bekannt. Hier werden aus Ziegelmehl, einem Abfallprodukt der Ziegelherstellung, Hüttensand und einer alkalischen Aktivatorlösung aus NaOH und Na_2SiO_3 Geopolymer-Formkörper für den Einsatz als Baumaterial hergestellt. **Tuyan et al** untersuchen die Auswirkungen der Aktivatorkonzentration auf das Aushärteverhalten von Geopolymermischungen aus Ziegelmehl, Natriumsilikat, Natriumhydroxid und Sand.

[0005] WO 2020/120405 A1 offenbart eine Geopolymer-Schaumzusammensetzung aus einem chemisch und einem mechanisch geschäumten Aluminiumsilikat-Geopolymer.

[0006] In DE 100 41 834 A1 wird ein Verfahren zur Herstellung von Porenbetonbauelementen offenbart, bei dem ein Treibmittel wie Aluminiumpulver der Schlämme zugegeben wird.

[0007] In EP 2 462 075 B1 wird eine Zusammensetzung zur Herstellung eines Feuerleichtsteins enthaltend wenigstens ein Aluminiumsilikat und/oder ein Calcium-Aluminiumsilikat und ein anorganisches Bindemittel, wie Gips, Calciumsulfat-Halbhydrat, Anhydrit, offenbart. EP 1 686 105 B1 offenbart ein Verfahren zum Herstellen feuerfester Leichtsteine aus Schleif- oder Mahlstaub von Feuerleichtsteinen, einem Bindemittel, wie Wasserglas oder Aluminiumphosphat, und Zusatzstoffen.

[0008] Aus dem Stand der Technik sind derzeit keine vollständig reststoffbasierten Zusammensetzungen zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen bekannt.

[0009] Aufgabe der Erfindung ist es daher, eine vollständig reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen, als auch einen Geopolymer-Leichtstein und ein Verfahren zu dessen Herstellung anzugeben.

[0010] Die Aufgabe wird gelöst durch eine reststoffbasierte Zusammensetzung, einen Geopolymer-Leichtstein und ein Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins mit den Merkmalen gemäß der unabhängigen Ansprüche 1, 9 und 11. Vorteilhafte Ausgestaltungen geben jeweils die abhängigen Ansprüche wieder.

[0011] Erfindungsgemäß enthält eine reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins mindestens ein reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel, mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator und mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel. In der reststoffbasierten Zusammensetzung liegt das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0.

[0012] Vorteilhaft ist eine derartige Zusammensetzung vollständig reststoffbasiert, so das natürliche Ressourcen geschont und Deponiemengen und -raum eingespart werden. Weiterhin vorteilhaft sind aus einem derartigen Gemisch hergestellte Geopolymer-Leichtsteine nach deren Nutzungsdauer vollständig recycelbar. Ebenfalls vorteilhaft lässt sich ein derartiges Gemisch zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen in einem Niedertemperaturprozess verarbeiten, so dass der Energiebedarf zur Herstellung der Leichtsteine signifikant gesenkt werden kann. Ebenfalls vorteilhaft werden eventuell in den reststoffbasierten Ausgangsstoffen enthaltende Schadstoffe immobilisiert.

[0013] Ein reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel im Sinne der Erfindung meint ein in Pulverform vorliegendes Bindemittel auf Basis von SiO_2 und Al_2O_3 und weiteren Alkali-, Erdalkali- und/oder Metalloxiden, welches als Rest- und/oder Abfallprodukt aus unterschiedlichen industriellen Prozessen hervorgeht

[0014] In weiteren Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel eine Mischung aus unterschiedlichen, reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemitteln.

[0015] In Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel Ziegelmehl, Braunkohleflugasche, Steinkohleflugasche, Rotschlamm, Klärschlammaschen oder eine Mischung der Vorgenannten.

[0016] Ziegelmehl meint dabei ein pulverförmiges Recycling- oder Abfallprodukt der Ziegelherstellung.

[0017] Braunkohleflugasche meint einen festen, pulverförmigen Rückstand der Verbrennung von Braunkohle. Stein-

kohleflugasche meint einen festen, pulverförmigen Rückstand der Verbrennung von Steinkohle.

[0018] Rotschlamm, auch bezeichnet als Bauxitrückstand, meint ein pulverförmiges Abfallprodukt, welches bei der Gewinnung von Aluminiumoxid aus aluminiumhaltigen Erzen anfällt und hauptsächlich Eisen-, Aluminium- und Titanoxide und verschiedene Kieselsäureverbindungen enthält.

[0019] Klärschlammasche meint einen festen und pulverförmigen Rückstand aus der Verbrennung von Klärschlamm, einem Abfallprodukt der Abwasserbehandlung in Kläranlagen.

[0020] In Ausführungsformen weist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel Korngrößen zwischen 0 μm und 250 μm , bevorzugt zwischen 0 μm und 125 μm , insbesondere bevorzugt zwischen 0 μm und 63 μm auf. Im Rahmen der Beschreibung der Erfindung meint die Angabe "Korngrößen zwischen 0 μm und 63 μm " eine Korngrößenverteilung, ermittelt bspw. durch fraktionierte Siebung mit Sieben üblicher genormter Maschenweite bis hin zur Maschenweite "63 μm " nach DIN EN 933-1 und/oder durch Lasergranulometrie nach ISO 13320:2020-01. Vorteilhaft steigt die Reaktivität des reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittels mit abnehmender Korngröße.

[0021] In Ausführungsformen weist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel ein molares Verhältnis von Si:Al im Bereich von 0,5:1 bis 6:1 auf. In weiteren Ausführungsformen weist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel einen Ca-Gehalt kleiner 15 Gew.-%, bevorzugt kleiner 10 Gew.-% auf.

[0022] Ein reststoffbasierter, alkalischer Aktivator ist in Ausführungsformen eine wässrige, alkalische, Aluminium-enhaltende Lösung, welche als Rest- und/oder Abfallstoff aus unterschiedlichen industriellen Prozessen hervorgeht. Vorteilhaft ermöglicht ein derartiger reststoffbasierter, alkalischer Aktivator die Bildung von Geopolymeren mit einem erhöhten Aluminium-Gehalt. Weiterhin vorteilhaft ist in einem derartigen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator Aluminium bereits gelöst und steht damit direkt der Geopolymerbildung zur Verfügung, so dass ein erhöhter Geopolymerisationsgrad erreicht wird, der die mechanischen Eigenschaften, wie die Festigkeit, des gebildeten Geopolymers positiv beeinflusst.

[0023] In Ausführungsformen ist der reststoffbasierte, alkalische Aktivator eine wässrige, alkalische, Aluminium enthaltende Lösung, hergestellt durch Lösen von Natriumaluminat in Wasser unter Zusatz von Natronlauge.

[0024] In weiteren Ausführungsformen ist der reststoffbasierte, alkalische Aktivator ein pulverförmiger, reststoffbasierter, alkalischer Aktivator, bevorzugt Natriumaluminat, welcher als Reststoff aus unterschiedlichen industriellen Prozessen hervorgeht. Vorteilhaft enthält die reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins dann Wasser, um die Lösung des pulverförmigen, reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zu ermöglichen.

[0025] Der Geopolymerisationsgrad ist von verschiedenen Faktoren abhängig, bspw. von der Reaktivität des mindestens einen reststoffbasierten Bindemittels, von der Alkalität des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators sowie den Parametern, wie Temperatur und Dauer, einer zur Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung.

[0026] In Ausführungsformen weist der mindestens eine reststoffbasierte, alkalische Aktivator einen Aluminium-Gehalt von 4 Gew.-% bis 5 Gew.-% auf. Vorteilhaft wird dadurch gelöstes Aluminium für die Geopolymerbildung bereitgestellt.

[0027] In weiteren Ausführungsformen weist der mindestens eine reststoffbasierte, alkalische Aktivator einen pH-Wert von 11 bis 14, bevorzugt von 12 bis 13 auf. Vorteilhaft wird ein ausreichendes Lösen des mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittels für die Geopolymerbildung erreicht.

[0028] Ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel im Sinne der Erfindung meint ein in Pulverform vorliegendes und mit den weiteren Bestandteilen der reststoffbasierten Zusammensetzung unter Gasbildung reagierendes Porosierungsmittel, welches als Rest- und/oder Abfallstoff aus unterschiedlichen industriellen Prozessen hervorgeht.

[0029] In Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte Porosierungsmittel eine Mischung unterschiedlicher reststoffbasierter Porosierungsmittel.

[0030] Ein Geopolymer-Leichtstein im Sinne der Erfindung meint einen Formkörper mit einer Dichte < 800 kg/m³, dessen festigkeitsgebende Struktur auf einem Geopolymernetzwerk basiert. Ein Geopolymernetzwerk ist ein alumosilikatisches Netzwerk aus SiO₄- und AlO₄-Tetraedern, verbunden über gemeinsame Sauerstoff-Atome mit einem molaren Verhältnis von Na:Al im Bereich von 0,4 bis 1,0, bevorzugt 0,5 bis 0,7.

[0031] In Ausführungsformen weist die reststoffbasierte Zusammensetzung weitere, nicht an der Geopolymerbildung beteiligte Komponenten auf. Weitere, nicht an der Geopolymerbildung beteiligte Komponenten sind bspw. Calciumhydroxid, Hüttensand oder Zement. Vorteilhaft kommt es neben der Geopolymerisation zur Ausbildung von Calciumsilikathydrat- (CSH-) und/oder Calciumaluminatsilikathydratphasen (CASH-Phasen), die zu einer schnelleren Verfestigung führen.

[0032] In bevorzugten Ausführungsformen liegt das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel in der reststoffbasierten Zusammensetzung im Bereich von 0,35 bis 0,55.

[0033] Vorteilhaft weist eine derartige Zusammensetzung eine optimale Konsistenz für die weitere Verarbeitung auf. Weiterhin vorteilhaft wird dadurch ein homogenes Aufschäumen und die Ausbildung einer gleichmäßigen Porenverteilung während einer zur Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung erreicht.

[0034] In bevorzugten Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte Porosierungsmittel ein siliziumbasiertes Pulver, wobei das siliziumbasierte Pulver ein Abfallprodukt der Silizium-produzierenden und/oder -verarbeitenden

tenden Industrie ist.

[0035] Vorteilhaft reagiert ein derartiges Porosierungsmittel erst während einer zur Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung. Weiterhin vorteilhaft reagiert ein derartiges Porosierungsmittel in alkalischer Umgebung nicht exotherm. Vorteilhaft werden dadurch Ressourcen geschont und Reststoffe verwertet.

[0036] Siliziumbasiert meint dabei, dass das Porosierungsmittel überwiegend aus Silizium besteht. In Ausführungsformen weist ein siliziumbasiertes Pulver mindestens 85 Gew.-% Silizium auf.

[0037] Abfallprodukte der Silizium-produzierenden und/oder verarbeitenden Industrie meint jegliche trockene, in Pulverform vorliegende Si-Reststoffe, wie bspw. gemahlene Schnittreste von Silizium-Wafern, gemahlene Silizium-Solarzellen aus dem Recycling von Alt-Solarmodulen, aufbereitete und getrocknete Silizium-Wafer-Sägeabfälle.

[0038] In Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte Porosierungsmittel eine Mischung unterschiedlicher siliziumbasierter Pulver.

[0039] In Ausführungsformen weist das siliziumbasierte Pulver eine Korngröße von $< 63 \mu\text{m}$, bevorzugt $< 45 \mu\text{m}$ auf. Vorteilhaft weisen derartige siliziumbasierte Pulver eine erhöhte Reaktivität auf und ermöglichen eine gleichmäßige Porenbildung und die Ausbildung einer homogenen Porenverteilung während einer zur Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung.

[0040] In bevorzugten Ausführungsformen ist der mindestens eine reststoffbasierte, alkalische Aktivator Natriumaluminatlauge.

[0041] Natriumaluminatlauge als industrielles Abfallprodukt fällt u.a. bei jeglichen industriellen Prozessen zur Reinigung und/oder Oberflächenbearbeitung von Aluminiumwerkstücken mit Natronlauge an, bspw. beim Beizen von Aluminiumteilen im Flugzeug- oder Fahrzeugbau.

[0042] In Ausführungsformen weist die Natriumaluminatlauge eine Konzentration von 3 bis 12 mol/l, bevorzugt von 5 bis 10 mol/l, besonders bevorzugt von 6 bis 7 mol/l auf. Vorteilhaft wird dadurch ein ausreichendes Lösen des reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittels für die Geopolymerbildung erreicht.

[0043] In Ausführungsformen ist die Natriumaluminatlauge hergestellt durch Lösen eines pulverförmigen, reststoffbasierten, alkalischen Aktivators, bevorzugt Natriumaluminat, in Wasser unter Zusatz von Natronlauge.

[0044] In bevorzugten Ausführungsformen ist das mindestens eine reststoffbasierte, alumosilikatische Bindemittel Ziegelmehl.

[0045] Vorteilhaft schont ein derartiges Bindemittel die Ressourcen und spart Deponiemengen und -raum ein. Ebenfalls vorteilhaft ist gegenüber nicht-reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemitteln, wie bspw. Metakaolin, keine thermische Vorbehandlung zur Herstellung des Ziegelmehls notwendig, so dass Energie eingespart wird.

[0046] In Ausführungsformen weist das Ziegelmehl 55 bis 65 Gew.-% SiO_2 und 8 bis 16 Gew.-% Al_2O_3 auf.

[0047] In bevorzugten Ausführungsformen liegt das Verhältnis von Wasser zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,3 bis 0,4.

[0048] Vorteilhaft weist eine derartige Zusammensetzung gute Verarbeitungseigenschaften auf und ermöglicht eine ausreichende Porenbildung und Ausbildung einer homogenen Porenverteilung bei der für die Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung.

[0049] Dem Fachmann ist bekannt, dass der Wasseranteil in der erfindungsgemäßen reststoffbasierten Zusammensetzung aus dem reststoffbasierten, alkalischen, wässrigen Aktivator stammt. In Ausführungsformen weist der mindestens eine reststoffbasierte, alkalische, wässrige Aktivator einen Wassergehalt von 70 bis 90 Gew.-% auf.

[0050] In bevorzugten Ausführungsformen liegt das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten Porosierungsmittels zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,001 bis 0,02 liegt.

[0051] Vorteilhaft werden dadurch 50 bis 90 Vol.-% Poren während einer zur Geopolymerbildung nötigen thermischen Aktivierung ausgebildet.

[0052] Weiterhin zur Erfindung gehört die Verwendung einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend mindestens ein reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel, mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator und mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel mit einem Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, alumosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins.

[0053] Vorteilhaft wird dadurch die Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins vollständig aus Reststoffen ermöglicht und damit Ressourcen geschont und Deponiemengen und -raum eingespart.

[0054] Ebenfalls zur Erfindung gehört die Verwendung einer erfindungsgemäßen, reststoffbasierten Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins.

[0055] Ebenfalls zur Erfindung gehört ein Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins, umfassend die Schritte

a) Bereitstellen einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend

- mindestens ein reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel,

- mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und
- mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel,

wobei das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt,

b) Mischen der reststoffbasierten Zusammensetzung,

c) Formen der reststoffbasierten Zusammensetzung,

d) Aktivieren der geformten, reststoffbasierten Zusammensetzung bei einer Temperatur im Bereich von 60°C bis 100°C für maximal 24 h.

[0056] Vorteilhaft wird dadurch die ressourcen- und/oder energieschonende Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen ermöglicht. Weiterhin vorteilhaft erfolgt die Herstellung der Geopolymer-Leichtsteine in einem Niedertemperaturprozess.

[0057] In Ausführungsformen erfolgt das Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins in der Reihenfolge a), b), c) und d).

[0058] In Ausführungsformen wird in Schritt a) eine reststoffbasierte Zusammensetzung, enthaltend mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel, ausgewählt aus Ziegelmehl, Braunkohleflugasche, Steinkohleflugasche, Rotschlamm, Klärschlamm oder eher Mischung der Vorgenannten, bereitgestellt.

[0059] In weiteren Ausführungsformen wird in Schritt a) eine reststoffbasierte Zusammensetzung, enthaltend mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, Natriumaluminatlauge, bereitgestellt.

[0060] In weiteren Ausführungsformen wird in Schritt a) eine reststoffbasierte Zusammensetzung, enthaltend mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel, ein siliziumbasiertes Pulver, bereitgestellt.

[0061] In weiteren Ausführungsformen wird in Schritt a) eine reststoffbasierte Zusammensetzung bereitgestellt, in der das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel in der reststoffbasierten Zusammensetzung im Bereich von 0,35 bis 0,55 liegt.

[0062] In Ausführungsformen erfolgt das Mischen in Schritt b) in handelsüblichen Mischern derart, dass eine homogene Mischung erzielt wird. Dem Fachmann ist bekannt mit welchen Vorrichtungen und welchen Parametern er dies erreichen kann.

[0063] In Ausführungsformen erfolgt das Formen in Schritt c) mittels Gießen der reststoffbasierten Zusammensetzung in eine Form, in der die reststoffbasierte Zusammensetzung dem nachfolgenden Schritt d) unterzogen wird.

[0064] In Ausführungsformen erfolgt die Aktivierung in Schritt d) bei 60°C bis 80°C für maximal 24h. In weiteren Ausführungsformen erfolgt das Aktivieren in Schritt d) unter Nutzung von Abwärme und/oder Abluft, bspw. Ofenabluft, Abwärme und/oder Abluft industrieller Prozesse.

[0065] In Ausführungsformen wird nach Schritt d) der hergestellte geopolymergebundene Leichtstein entformt. Entformen meint dabei, dass der hergestellte Leichtstein von einer Schritt c) genutzten Form befreit wird.

[0066] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt nach Schritt d) eine thermische Nachbehandlung bei einer Temperatur von 900°C bis 1200°C für 3 h bis 12 h.

[0067] Vorteilhaft erhöht sich dadurch die Druckfestigkeit des Geopolymer-Leichtsteins.

[0068] Die thermische Nachbehandlung kann vor oder nach dem Entformen des Geopolymer-Leichtsteins, bevorzugt nach dem Entformen, durchgeführt werden.

[0069] Während der thermischen Nachbehandlung findet üblicherweise ein Schrumpfen des Geopolymer-Leichtsteins statt. In Ausführungsformen beträgt die Schrumpfung 5% bis 10 % des Volumens des Geopolymer-Leichtsteins.

[0070] Die thermische Nachbehandlung kann vorteilhaft direkt beim Einsatz des Geopolymer-Leichtsteins, bspw. beim Einsatz als feuerfeste Zustellung von Öfen oder Ofenwagen, erfolgen. Dadurch wird weiter Energie eingespart, da kein separater Prozessschritt zur thermischen Nachbehandlung durchgeführt werden muss.

[0071] Ebenfalls zur Erfindung gehört ein Geopolymer-Leichtstein, herstellbar aus einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel, mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator und mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel, wobei in der reststoffbasierten Zusammensetzung das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0. Erfindungsgemäß weist ein Geopolymer-Leichtstein eine Porosität im Bereich von 50 bis 90 Vol.-%, eine Druckfestigkeit nach 28 Tagen von mindestens 10 N/mm², ein Molverhältnis Si:Al im Bereich von 3 bis 4,5 und ein Molverhältnis Na:Al im Bereich von 0,5 bis 0,7 aufweist.

[0072] Vorteilhaft besteht ein derartiger Geopolymer-Leichtstein vollständig aus Reststoffen und ist damit ressourcen- und energieschonend. Weiterhin vorteilhaft kann ein derartiger Leichtstein nach dem Ende seiner Nutzungsdauer vollständig recycelt werden und erneut als Rohstoff zur Verfügung stehen. Weiterhin vorteilhaft ist ein derartiger Geopolymer-Leichtstein bei Temperaturen bis zu 1200°C einsetzbar.

[0073] Die Druckfestigkeit wird in Anlehnung an DIN EN 196-1 und DIN EN 12390-3 bestimmt.

[0074] In Ausführungsformen ist ein derartiger Geopolymer-Leichtstein bis zu einer Temperatur von 1200°C hitzebe-

ständig, d.h. die angegebenen Festigkeiten des Geopolymer-Leichtsteins sind bis zu dieser Temperatur gewährleistet. Die Hitzebeständigkeit wird in Anlehnung an DIN 51730 und ISO 540 wurde mittels eines Erhitzungsmikroskop bestimmt. **[0075]** In Ausführungsformen weist der Geopolymer-Leichtstein eine Dichte im Bereich von 400 bis 800 kg / m³ auf. Vorteilhaft ist ein derartiger Leichtstein als Leichtbaustoff geeignet.

[0076] Die Berechnung der Gesamtporosität erfolgt nach folgender Gleichung:

$$p \text{ [Vol.-%]} = \frac{\rho_0 - \rho_R}{\rho_0} \cdot 100$$

mit p = Gesamtporosität [Vol.-%], ρ_0 = Reindichte [kg/dm³] und ρ_R = Rohdichte [kg/dm³], wobei die Bestimmung der hierfür benötigten Dichten in Anlehnung an DIN EN 1936 erfolgt.

[0077] In weiteren Ausführungsformen weist der Geopolymer-Leichtstein eine Wärmeleitfähigkeit von 0,07 bis 0,2 W/mK auf. Vorteilhaft ist ein derartiger Leichtstein als Wärmedämmstoff geeignet.

[0078] Die Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit wird nach dem Heißdraht- (Parallel-) Verfahren nach DIN EN 993-15 durchgeführt.

[0079] In weiteren Ausführungsformen weist der Geopolymer-Leichtstein ein Molverhältnis Si:Al von > 4 auf. Vorteilhaft ist ein derartiger Leichtbaustein bei Temperaturen > 1000°C einsetzbar.

[0080] Weiterhin zur Erfindung gehört die Verwendung eines erfindungsgemäßen Geopolymer-Leichtsteins im Ofenbau und/oder im Bauwesen.

[0081] Die erfindungsgemäßen Leichtbausteine sind aufgrund ihrer Eigenschaften im Bauwesen bspw. als Dämmmaterial oder Leichtbaustoff und/oder im Ofenbau als feuerfeste Zustellung für Öfen und/oder Ofenwagen einsetzbar.

[0082] Erfindungsgemäß wird Natriumaluminatlauge als alkalischen Aktivator und/oder Si-Pulver als Porosierungsmittel in der Geopolymerbildung verwendet.

[0083] Vorteilhaft wird dadurch die Geopolymerbildung vollständig aus Reststoffen ermöglicht, so dass Ressourcen geschont werden und Deponiemengen und -räume eingespart werden können.

[0084] Weiterhin zu Erfindung gehört die Verwendung von Natriumaluminatlauge und/oder Si-Pulver zur Herstellung einer erfindungsgemäßen reststoffbasierten Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins und/oder zur Herstellung eines erfindungsgemäßen, Geopolymer-Leichtsteins und/oder in einem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins.

[0085] Für die Realisierung der Erfindung ist es auch zweckmäßig, die vorbeschriebenen Ausführungsformen und Merkmale der Ansprüche zu kombinieren.

[0086] Nachfolgend soll die Erfindung anhand einiger Ausführungsbeispiele eingehender erläutert werden. Die Ausführungsbeispiele sollen dabei die Erfindung beschreiben ohne diese zu beschränken.

Ausführungsbeispiele

Beispiel 1: reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen

[0087] Eine reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins enthält Ziegelmehl als reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel, Natriumaluminatlauge als reststoffbasierten, alkalischen Aktivator und Si-Pulver als reststoffbasiertes Porosierungsmittel. In der reststoffbasierten Zusammensetzung beträgt das Verhältnis der Natriumaluminatlauge zum Ziegelmehl 0,4, das Verhältnis des Si-Pulvers zum Ziegelmehl 0,01 und das Verhältnis von Wasser zum Ziegelmehl 0,35.

[0088] Das Ziegelmehl weist eine Korngröße im Bereich von 0 µm bis 63 µm und das Si-Pulver eine Korngröße < 63 µm auf. Die Natriumaluminatlauge weist eine Konzentration von 6 mol/l und einen Wassergehalt von 86 Gew.-% auf.

Beispiel 2: reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen

[0089] Eine reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins enthält Ziegelmehl als reststoffbasiertes, alumosilikatisches Bindemittel, Natriumaluminatlauge als reststoffbasierten, alkalischen Aktivator und Si-Pulver als reststoffbasiertes Porosierungsmittel. In der reststoffbasierten Zusammensetzung beträgt das Verhältnis der Natriumaluminatlauge zum Ziegelmehl 0,51, das Verhältnis des Si-Pulvers zum Ziegelmehl 0,01 und das Verhältnis von Wasser zum Ziegelmehl 0,44.

[0090] Das Ziegelmehl weist eine Korngröße im Bereich von 0 µm bis 63 µm und das Si-Pulver eine Korngröße < 63 µm auf. Die Natriumaluminatlauge weist eine Konzentration von 6 mol/l und einen Wassergehalt von 87 Gew.-% auf.

Beispiel 3: Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins und Geopolymer-Leichtstein

[0091] Ein Geopolymer-Leichtstein wird hergestellt, indem eine reststoffbasierte Zusammensetzung entsprechend Bsp. 1 bereitgestellt wird. Anschließend wird die reststoffbasierte Zusammensetzung in einem handelsüblichen Mischaggregat homogen gemischt. Nachfolgend erfolgt das Formen der reststoffbasierten Zusammensetzung mittels Gießen in eine geeignete Form. Die nachfolgende Aktivierung der reststoffbasierten Zusammensetzung wird bei einer Temperatur von 80°C für 24 h durchgeführt.

[0092] Der so hergestellte Geopolymer-Leichtstein weist eine Druckfestigkeit nach 28 Tagen von 23,2 N/mm² und eine Porosität von 69,6Vol.-%. Das Molverhältnis von Si:Al beträgt 4,32 und das Molverhältnis von Na:Al beträgt 0,52.

Beispiel 4: Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins und Geopolymer-Leichtstein

[0093] Ein Geopolymer-Leichtstein wird hergestellt, indem eine reststoffbasierte Zusammensetzung entsprechend Bsp. 2 bereitgestellt wird. Die weitere Herstellung erfolgt analog Beispiel 3.

[0094] Der so hergestellte Geopolymer-Leichtstein weist eine Druckfestigkeit nach 28 Tagen von 10 N/mm² und eine Porosität von 72,7Vol.-% auf. Das Molverhältnis von Si:Al beträgt 4,16 und das Molverhältnis von Na:Al beträgt 0,61.

Beispiel 5: Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins und Geopolymer-Leichtstein

[0095] Ein Geopolymer-Leichtstein wird entsprechend den Ausführungen in Beispiel 3 hergestellt. Nach der Aktivierung wird der Geopolymer-Leichtstein einer thermischen Nachbehandlung bei 1000°C für 4 h unterzogen. Ein derart hergestellter Geopolymer-Leichtstein weist eine Porosität von 61,2Vol.-% auf. Das Molverhältnis von Si:Al beträgt 4,32 und das Molverhältnis von Na:Al beträgt 0,52. Die Druckfestigkeit nach 28 Tagen ist mit 46,7 N/mm² deutlich erhöht gegenüber einem Geopolymer-Leichtstein, hergestellt ohne thermische Nachbehandlung.

Zitierte Nicht-Patent-Literatur

[0096]

- | | |
|---------------------|--|
| [Davidovitis et al] | J. Davidovits; "GEOPOLYMERS Inorganic polymeric new materials"; J. Therm. Anal. 1991, 37, 1633-1656) |
| [Zawrah et al] | M. F. Zawrah, R.A. Gadoa, N. Feltin, S. Ducourtieux, L. Devoille; "Recycling and utilization assessment of waste fired clay bricks (Grog) with granulated blast-furnace slag for geopolymer production"; Process safety and Environmental Protection 103 (2016) 237-251. |
| [Tuyan et al] | M. Tuyan, Ö. Andiç-Çakir, K. Ramyar; "Effect of alkali activator concentration. and curing condition on strength and microstructure of waste clay brick powder-based geopolymer"; Composites Part B 135 (2018) 242-252. |

Patentansprüche

1. Reststoffbasierte Zusammensetzung zur Herstellung von Geopolymer-Leichtsteinen, enthaltend

- mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel,
- mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und
- mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel,

wobei das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt.

2. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,35 bis 0,55 liegt.

3. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine reststoffbasierte Porosierungsmittel ein siliziumbasiertes Pulver ist, wobei das siliziumbasierte Pulver ein Abfallprodukt der Silizium-produzierenden und/oder -verarbeitenden Industrie ist.

4. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** der mindestens eine reststoffbasierte, alkalische Aktivator Natriumaluminatlauge ist.

5. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine reststoffbasierte, aluminosilikatische Bindemittel Ziegelmehl ist.

6. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verhältnis von Wasser zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,3 bis 0,4 liegt.

7. Reststoffbasierte Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten Porosierungsmittels zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,001 bis 0,02 liegt.

8. Verwendung einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend

- mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel,
- mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und
- mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel,

wobei das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins.

9. Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins, umfassend die Schritte

a) Bereitstellen einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend

- mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel,
- mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und
- mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel,

wobei das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt,

b) homogenes Mischen der reststoffbasierten Zusammensetzung,

c) Formen der reststoffbasierten Zusammensetzung,

d) Aktivieren der geformten, reststoffbasierten Zusammensetzung bei einer Temperatur im Bereich von 60°C bis 100°C für maximal 24 h.

10. Verfahren nach Anspruch 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach Schritt d) eine thermische Nachbehandlung bei einer Temperatur von 900°C bis 1200°C für 3 h bis 12 h erfolgt.

11. Geopolymer-Leichtstein, herstellbar aus einer reststoffbasierten Zusammensetzung, enthaltend

- mindestens ein reststoffbasiertes, aluminosilikatisches Bindemittel,
- mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivator, und
- mindestens ein reststoffbasiertes Porosierungsmittel,

wobei in der reststoffbasierten Zusammensetzung das Verhältnis des mindestens einen reststoffbasierten, alkalischen Aktivators zum mindestens einen reststoffbasierten, aluminosilikatischen Bindemittel im Bereich von 0,2 bis 1,0 liegt,

dadurch gekennzeichnet, dass der Geopolymer-Leichtstein eine Porosität im Bereich von 50 bis 90 Vol.-%, eine Druckfestigkeit nach 28 Tagen von mindestens 10 N/mm², ein Molverhältnis Si:Al im Bereich von 3 bis 4,5 und ein Molverhältnis Na:Al im Bereich von 0,5 bis 0,7 aufweist.

12. Verwendung eines Geopolymer-Leichtsteins nach Anspruch 11 im Ofenbau und/oder im Bauwesen.

13. Verwendung von Natriumaluminatlauge als alkalischen Aktivator und/oder Si-Pulver als Porosierungsmittel in der Geopolymerbildung.

- 14.** Verwendung von Natriumaluminatlauge und/oder Si-Pulver zur Herstellung einer reststoffbasierten Zusammensetzung zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins nach einem der Ansprüche 1 bis 7 und/oder zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins nach Anspruch 11 und/oder in einem Verfahren zur Herstellung eines Geopolymer-Leichtsteins nach einem der Ansprüche 9 oder 10.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Patentdokumente

- WO 2020120405 A1 [0005]
- DE 10041834 A1 [0006]
- EP 2462075 B1 [0007]
- EP 1686105 B1 [0007]

In der Beschreibung aufgeführte Nicht-Patentliteratur

- **J. DAVIDOVITS.** GEOPOLYMERS Inorganic polymeric new materials. *J. Therm. Anal.*, 1991, vol. 37, 1633-1656 [0096]
- **M. F. ZAWRAH ; R.A. GADOA ; N. FELTIN ; S. DUCOURTIEUX ; L. DEVOILLE.** Recycling and utilization assessment of waste fired clay bricks (Grog) with granulated blast-furnace slag for geopolymer production. *Process safety and Environmental Protection*, 2016, vol. 103, 237-251 [0096]
- **M. TUYAN ; Ö. ANDIÇ-ÇAKIR ; K. RAMYAR.** Effect of alkali activator concentration. and curing condition on strength and microstructure of waste clay brick powder-based geopolymer. *Composites*, 2018, vol. 135, 242-252 [0096]